

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

BEST AVAILABLE COPY

(11)Publication number : 58-165254

(43)Date of publication of application : 30.09.1983

(51)Int.Cl.

H01M 4/96

(21)Application number : 57-047466

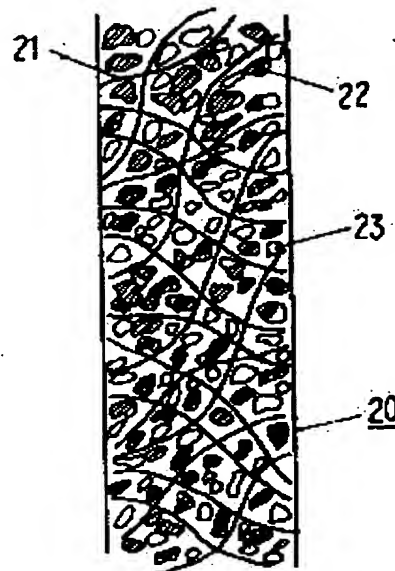
(71)Applicant : FUJI ELECTRIC CO LTD

(22)Date of filing : 26.03.1982

(72)Inventor : TAJIMA HIROYUKI
SAKURAI MASAHIRO**(54) METHOD OF MANUFACTURING GAS-DIFFUSION ELECTRODE FOR FUEL CELL****(57)Abstract:**

PURPOSE: To reduce electric resistance, improve thickness accuracy and heighten performance, by forcibly filling the openings of a porous carbon fiber film with both a mixture comprising ethylene tetrafluoride and carbon powder bearing a catalyst and another mixture comprising ethylene tetrafluoride and carbon powder bearing no catalyst.

CONSTITUTION: A dispersive suspension containing carbon powder 22 bearing no catalyst and ethylene tetrafluoride is forcibly filled into the openings of a carbon fiber film 21 through one of its sides by suction so that the suspension reaches a predetermined depth. After that, another dispersive suspension containing carbon powder 22 bearing a catalyst and ethylene tetrafluoride 23 is forcibly filled into the openings of the film 21. The porous film 21 is then dried and baked so that an electrode 20 is provided.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭58—165254

⑤ Int. Cl.³
H 01 M 4/96

識別記号

庁内整理番号
7268—5H

⑬ 公開 昭和58年(1983)9月30日

発明の数 1
審査請求 未請求

(全 3 頁)

⑭ 燃料電池用ガス拡散電極の製造方法

⑯ 特 願 昭57—47466

⑰ 出 願 昭57(1982)3月26日

⑱ 発 明 者 田島博之

川崎市川崎区田辺新田1番1号
富士電機製造株式会社内

⑲ 発 明 者 桜井正博

川崎市川崎区田辺新田1番1号

富士電機製造株式会社内

⑳ 出 願 人 富士電機製造株式会社

川崎市川崎区田辺新田1番1号

㉑ 代 理 人 弁理士 横屋昶夫

明 細 書

1. 発明の名称

燃料電池用ガス拡散電極の製造方法

2. 特許請求の範囲

(1) 多孔性炭素繊維膜の空孔内に、前記多孔性炭素繊維膜の一面から炭素粉末と触媒および四弗化エチレンとを強制的に充填することを特徴とする燃料電池用ガス拡散電極の製造方法。

(2) 特許請求の範囲第1項に記載の方法において、四弗化エチレンにより撥水処理された多孔性炭素繊維膜の一面から触媒を担持する炭素粉末と四弗化エチレンとの分散懸濁液を前記多孔性炭素繊維膜の空孔内に強制的に充填することを特徴とする燃料電池用ガス拡散電極の製造方法。

(3) 特許請求の範囲第1項に記載の方法において、多孔性炭素繊維膜の一面から触媒を担持する炭素粉末と、量と共にして撥水性を変化させる四弗化エチレンとの分散懸濁液を順次前記多孔性炭素繊維膜の空孔内に強制的に充填することを特徴とする燃料電池用ガス拡散電極の製造方法。

(4) 特許請求の範囲第1項に記載の方法において、多孔性炭素繊維膜の一面から触媒を担持しない炭素粉末と四弗化エチレンとの分散懸濁液を前記多孔性炭素繊維膜の空孔の所定の厚さまで強制的に充填したのち、さらに触媒を担持する炭素粉末と四弗化エチレンとの分散懸濁液を前記空孔の残り厚さに強制的に充填することを特徴とする燃料電池用ガス拡散電極の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、外部から燃料と酸素（もしくは空気）とを連続的に供給して、電気化学的な反応により電気エネルギーを取出す燃料電池用ガス拡散電極の製造方法に関する。

第1図はこの種の燃料電池の概略構成図を示す。図において燃料電池1は陰極（水素電極）2と陽極（酸素電極）3との向き合う面によつて電解液区画室5が形成される。この電解液区画室5には、非電子電導性を有する多孔性マトリックス4が收容され、電解液を含有する。陰極2と陽極3とのマトリックス4と反対側面には、ガス区画室6、

特開昭58-165254(2)

7が形成され、陰極2および陽極3に一部接触して集電し、かつ反対ガスとの混合を防止するセパレータ板8, 9が配置されている。次に、第2図は第1図の電極の断面拡大図を示す。図において電極2, 3は孔径が約50 μ mないし150 μ m程度の多孔性炭素繊維膜からなる電極基材10を支持材料として、この基材10上にガス拡散撥水層11が設けられ、さらにこの撥水層11上に触媒層12が設けられている。ガス拡散撥水層11は炭素粉末、例えばカーボンブラック、活性炭、グラファイトと、四弗化エチレン(商品名テフロン)との混合物からなる。触媒層12は触媒、例えば白金、パラジウム、銀を担持する炭素粉末と四弗化エチレンとの混合物からなる。従来、このような電極2, 3は次のようにして作製されていた。炭素粉末と四弗化エチレンとの分散混合液からなる撥水層材と、触媒を担持した炭素粉末と四弗化エチレンとの分散混合液からなる触媒層材とを、撥水層材、触媒層材の順序でスプレー法もしくは印刷法などにより、電極基材10に塗布する。ま

たは、撥水層材および触媒層材をそれぞれ別個に薄膜状に作製したのち、電極基材10上に撥水層材、触媒層材の順序に重ねる。このように作製されたのち、焼成または加圧焼成することにより電極2, 3が完成される。この際、焼成による電極2, 3は、ガス拡散撥水層11および触媒層12のはく離、電極基材10とガス拡散撥水層11との間およびガス拡散撥水層11と触媒層12との間の接触抵抗が増加するという問題があつた。また、加圧焼成による電極2, 3は、ガス拡散が阻害されるという問題があつた。さらに、電極基材10上に複数個の層を重ねるために、電極2, 3の厚さ寸法を所定の精度内に揃えることは困難であつた。

本発明は、上述の点に鑑み、従来技術の欠点を除き電気抵抗が減少し、厚さ寸法精度が向上し、高性能化が達成される燃料電池用ガス拡散電極の製造方法を提供することを目的とする。

このような目的は本発明によれば、基材となる多孔性炭素繊維膜の空孔内に、前記多孔性炭素繊維

膜の一面から炭素粉末と触媒および四弗化エチレンとを強制的に充填することにより達成される。

本発明の一実施例によれば、四弗化エチレンにより撥水处理された多孔性炭素繊維膜の一面から、触媒を担持する炭素粉末と四弗化エチレンとの分散懸濁液を、前記多孔性炭素繊維膜の空孔内に、強制的に充填する。

また、本発明の他の実施例によれば、多孔性炭素繊維膜の一面から触媒を担持する炭素粉末と、量を異にして撥水性を変化させる四弗化エチレンとの分散懸濁液を順次前記多孔性炭素繊維膜の空孔内に強制的に充填する。

なお、本発明のさらに他の実施例によれば、多孔性炭素繊維膜の一面から触媒を担持しない炭素粉末と四弗化エチレンとの分散懸濁液を前記多孔性炭素繊維膜の空孔の所定の厚さまで、強制的に充填したのち、さらに触媒を担持する炭素粉末と四弗化エチレンとの分散懸濁液を前記空孔に強制的に充填する。

次に、本発明の実施例を図面に基づき、詳細に

説明する。

第3図は本発明の方法により製造された電極の一例の概略構成図を示す。図において電極20は多孔性炭素繊維膜21の空孔内に触媒を担持する炭素粉末22および四弗化エチレン23が充填されている。本実施例によれば多孔性炭素繊維膜21は有孔度約80%ないし85%程度で、孔径約20 μ mないし80 μ m程度で、厚さ約0.5 μ m程度とし、あらかじめ四弗化エチレン分散液に浸漬されて、四弗化エチレンを付着させて、撥水处理が施されている。この多孔性炭素繊維膜21を、図示されていない多孔性塩ビ板または四弗化エチレン透過紙を透過板とする吸引濾過台上に、設置する。こののち、白金、パラジウム、銀などの貴金属触媒を担持するカーボンブラック、活性炭、グラファイトなどの炭素粉末22と混合割合を約25重量%程度とする四弗化エチレンとの分散懸濁液を吸引しながら、多孔性炭素繊維膜21上に押し込んで、この繊維膜21の空孔内に完全に充填させる。この充填ののち、多孔性炭素繊維膜

特開昭58-165254(3)

21を通過板より取り外して、約100度Cで、一晩程度乾燥する。この乾燥ののち、350度C程度の温度により約3分間ないし4分間焼成して、電極20が完成する。

また、本発明の他の実施例によれば、多孔性炭素繊維膜21の一面から、触媒を担持する炭素粉末22と、量を変えて撥水性を変化させる四弗化エチレン23との分散懸濁液を、触媒炭素繊維膜21の空孔内に、上述と同様な吸引法により、強制的に完全に充填する。この充填ののち、多孔性炭素繊維膜21を上述と同様に乾燥し、焼成して、電極20が完成する。

なお、本発明のさらに他の実施例によれば、多孔性炭素繊維膜21の一面から、触媒を担持しない炭素粉と四弗化エチレンとの分散懸濁液を、炭素繊維膜21の空孔の所定の厚さまで、上述と同様な吸引法により、強制的に充填する。この充填ののち、さらに触媒を担持する炭素粉末22と四弗化エチレン23との分散懸濁液を強制的に充填する。この充填ののち、多孔性炭素繊維膜21を、

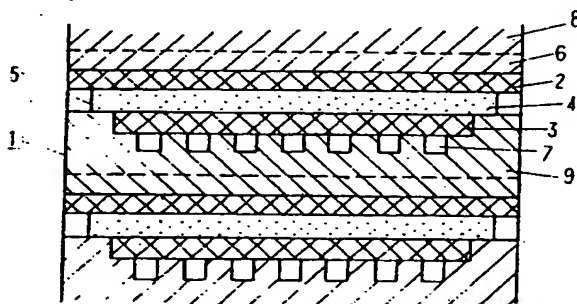
上述と同様に乾燥し、焼成して、電極20が完成する。

以上に説明するように本発明によれば、多孔性炭素繊維膜の空孔内に、触媒を担持する炭素粉末と四弗化エチレンとの混合物および触媒を担持しない炭素粉末と四弗化エチレンとの混合物を強制的に充填することにより、電極の電気抵抗が主として多孔性炭素繊維膜の電気抵抗で規制され、電極基材とガス拡散撥水層との間およびガス拡散撥水層と触媒層との間の接触抵抗が減少し、また触媒層とガス拡散撥水層との間のはく離を生ずることなく、電極の厚さ寸法は電極基材の厚さとして揃えられ、寸法精度が向上し、高性能化が達成されるという効果を有する。

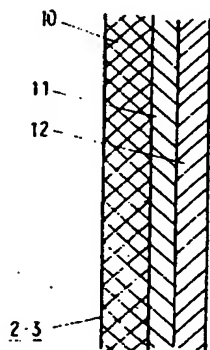
4. 図面の簡単な説明

第1図は燃料電池の概略構成図、第2図は第1図の電極の断面拡大図、第3図は本発明の一実施例の概略構成図である。

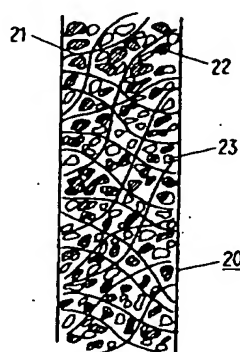
20：電極、21：多孔性炭素繊維膜、22：触媒を担持する炭素粉末、23：四弗化エチレン。



第 1 図



第 2 図



第 3 図